磁性材料とともに 40 年

JABM理事
株式会社プロテリアル
諏訪部 繁和

2022 年度から当協会の理事と技術委員を務めさせて頂いております。本年 1 月より、勤務している会社名が、日立金属（株）から（株）プロテリアル（PROTERIAL）へ変わったタイミングで寄稿の機会を頂きましたことに感謝申し上げます。

東北大学工学部電気系 3 年の時に垂直磁気記録に興味をもち研究室への配属を希望しましたが叶わず、第二希望の磁性材料を扱っている研究室（ここで恩師である高橋 研先生と出会いました）に入ってから 40 年が経ちました。磁気記録への興味に始まり、軟磁性材料から磁石、薄膜から焼結体と、広範囲の材料や応用製品に技術面、事業面から携わってきました。今回の素心では自己紹介も兼ねて、これまで関わってきた印象深い磁性材料について書いてみたいと思います。少し古い話もありますが、現在磁性材料分野に携わっている方々の今後の取り組みの参考となれば幸いです。

1．Fe-Al-Si（Sendust）

大学時代は主に Fe-Si、Fe-Al-Si 系軟磁性薄膜に関する研究を行いました。同じ研究室内では Fe-Al-Si 系合金単結晶を用いて結晶磁気異方性定数 K_1 や磁歪定数 λ_{100}、λ_{111} を測定し、組成や結晶相（α、B2、DO_3 構造）と磁気特性との関連を地道に研究していました [1)]。スパッタリング法で薄膜化することで、バルクでは実現できない結晶相が得られたので、その結晶構造（相、組織）と磁気特性の関連を調べ [2)]、修士論文を書きました。Fe-Al-Si 系合金のうち、Si9.5wt%、Al5.5wt%、残余 Fe 近傍の狭い組成領域で、K_1 と λ_{100}、λ_{111} が室温でゼロとなり優れた軟磁気特性を示すのが「Sendust」合金 [3)] であり、現在では圧粉磁心としても用途が広がっているのは皆さんご存知の通りです。

Sendust 薄膜は、成膜直後はほとんど不規則相α構造で軟磁性を示しませんが、熱処理後に規則相 DO_3 構造に変態して軟磁性を示すようになります。卒業後に入社した会社では、この Sendust 薄膜を用いた磁気記録用の Metal-In-Gap(MIG) ヘッド（Mn-Zn フェライトコアのギャップ近傍に高 Bs の軟磁性膜を配置する磁気ヘッド）の開発・実用化に取り組みました [4)]。大学時代に学んだ磁性材料に関する知識と人脈がその後のベースになったことは間違いありません。

2．Fe 基微結晶材料

次に磁気記録の高密度化対応のため、磁束密度がより高い磁気ヘッド用薄膜材料の探索に取り組みました。ちょうど FINEMET(Fe-Cu-Nb-Si-B) という Fe 基微結晶の薄帯材料 [5)] が所属していた研究所で開発されたこともあり、その薄膜化にも取り組みました [6)]。Fe 基や Co 基微結晶薄膜や多層膜を種々検討しましたが、最終的には Fe-Ta-N 系の微結晶薄膜が MIG ヘッドで実用化され [7)]、博士学位論文も書きました。薄帯でも薄膜でも 10nm 程度の微結晶粒間に働く磁気的交換結合によって局所的な異方性分散が小さくなり、良好な軟磁気特性が得られるというメカニズムは不変であり、変圧器やモーターなどの電磁変換やパワーエレクトロニクスの受動素子に応用される、現在の軟磁性材料の開発取り組みにもつながっています。

3．GMR（Giant Magneto-Resistive）

1990 年代に HDD（ハードディスクドライブ）用磁気ヘッドとして、記録 - 再生分離型が開発され、再生ヘッドは磁気抵抗効果（MR: Magneto-Resistive）を用いたものが主流となり、その後に登場した GMR ヘッドの開発に従事しました。当時は面記録密度の向上が年率 60%以上とムーアの法則を超えるほどで、開発から量産へのスピードはすさまじいものがありました。Spin Valve [8)] と呼ばれる自由層 / 非磁性層 / 固定層 / 反強磁性層など厚さ数 nm の磁性膜を積層した構造で、AlTiC の基板上に数万個の素子を作るという、半導体には及ばないまでも、大掛かりなクリーンルームでの薄膜プロセスが必要でした。磁性層（自由層・固定層）として用いた Ni-Fe/Co-Fe 膜の他、これまで馴染みの薄かった Pt-Mn、Ir-Mn、Ni-Mn などの反強磁性膜や永久磁石膜など、各役割を果たす磁性膜を組み合わせたデバイス設計であり、再生ヘッドとしてのセンシング感度と安定性を両立、信頼性（耐 ESD や 通電寿命) を確保し、媒体や信号処理と組み合わせた磁気記録技術の総合力で HDD 市場は拡大していきました。全体最適のために材料、デバイスはどうあるべきかを強く意識した時期でした。垂直磁気記録や TMR（Tunnel-MR）に直接従事することはありませんでしたが、今後の新たな超高感度センシング技術の実用化や反強磁性を用いたデバイスの出現に注目しています。

4．Nd-Fe-B 磁石

学生時代に Sm-Co を超えるすごい磁石が発見されたと聞いたことを覚えています [9)]。それから 25 年余りたって初めて磁石の仕事に携わることになり、改めて Nd-Fe-B 磁石がすばらしい発明であることを実感しました。Nd と Fe を用いており、Sm-Co より価格的にも安く特性の高い磁石でしたが、原料産出国の政策により 2010 年に希土類原料価格の高騰や輸出規制といった技術以外の問題に直面しました。

その後の 10 年で、ESICMM（元素戦略磁性材料研究拠点）や MagHEM（高効率モーター用磁性材料技術研究組合）の取り組みも含め、保磁力機構への理解や高効率モーター設計は大きく進展しましたが、技術的な内容は他の報告をご覧頂ければと思います。

現在、経済安全保障推進法の特定重要物資に「永久磁石」が指定され、リサイクルも含めた磁石産業のサプライチェーンの強靭化、欧米他との連携が重要なテーマとなっています。今後とも地政学的な要因や電動化の急激な進展などによって、原材料価格の急騰や調達難は起こって

ほしくありませんが、一方で各種の制約が、新たな技術や市場を生み出す原動力になることも事実だと思っています。

5．フェライト磁石

自動車の補機モーターや家電などへの使用量が多く、Ba フェライト、Sr フェライト、あるいは 9 材といったグレードがあることは知っていましたが、磁石部門に来て初めて Fe^{3+}を含む酸化物のフェリ磁性体であるこの磁石に関わりました。高性能材と言われる Sr-La-Co[10] や Ca-La-Co 置換フェライト磁石 [11] では、複雑な M 型（マグネトプランバイト型）の原子配列の中で、フェリ磁性の Fe の磁気モーメントの向きを考え、逆向きの磁気モーメントを持つ配位を Co や Ca で置換して Br を高めたり、元素置換によって全体の電荷補償を施したり、なかなか奥の深い材料だと感じています。中性子回折や放射光を含めた最先端の解析技術による局所構造解析が進展し [12]、その結晶構造と磁気特性の関連性がさらに解明されることを期待しています。

番外編：窒化鉄 α″-$Fe_{16}N_2$

大学時代に高橋 實先生から、低真空の蒸着装置で Fe 薄膜を作製し高 Bs の窒化鉄を発見したエピソード [13] を直接お聞きしたのが、とても印象深い材料です。その後、MBE やスパッタを用いた薄膜の研究を経て、ナノ粒子での取り組みも続いています。この材料は Fe よりも磁化が大きいポテンシャルを持っており、準安定相でその耐熱性やハード or ソフトの出口の難しさはあると思いますが、今後の展開に注目しています。

まとめ

現在、カーボンニュートラルやグリーンエネルギー社会を実現するため、自動車の電動化（EV 化）や風力発電などの普及が進み、永久磁石、軟磁性材料とも市場規模拡大が見込まれています。カスタマイズや性能競争から、大量生産やコモディティー化の動きになっていくでしょう。多くの産業で通ってきた道ですが、このような状況下で日本がお家芸としてきた磁性材料分野で生き残っていくためには、新しい材料や製造プロセスの開発に加え、材料と応用製品側の新しい発想や設計をうまくすり合わせることがポイントになると考えています。今後は、材料開発に対するアプローチも変わり AI や MI を最大限に活用するため、産官学のさらなる連携が必要です。特に磁性材料とその応用に興味を持つ人材の育成が重要課題だと思っています。

磁性材料とのかかわりも 40 年と随分長くなりましたが、「磁性材料の次のブレークスルーは何なのか？」、JABM の理事・技術委員として何を為すべきかを自問自答しながら、もうしばらく磁性材料に関わっていきたいと思います。

参考文献

1) T. Wakiyama et al.: IEEE Trans. Magn.,17, 3147 (1981).
2) 高橋 研 他：日本応用磁気学会誌 ,10, 307 (1986).
3) 増本 量、山本 達治：日本金属学会誌 ,1, 127 (1937).
4) H. Iwata et al.: IEEE Trans. Magn., 26, 2394 (1990).
5) Y. Yoshizawa et al.: J. Appl. Phys., 64, 6044 (1988).
6) 諏訪部 繁和 他：日立金属技報 , 7, 7 (1991).
7) R. Goto et al.: IEEE Trans. Magn., 30, 3909 (1994).
8) C. Tsang et al.: IEEE Trans. Magn., 30, 3801 (1994).
9) M. Sagawa et al.: J. Appl. Phys., 55, 2083 (1984).
10) 緒方 安伸 他：粉体および粉末冶金 , 50, 636 (2003) .
11) 小林 義徳 他：粉体および粉末冶金 , 55, 541 (2008).
12) 小林 義徳 他：日立金属技報 , 33, 34 (2017).
13) T. K. Kim, M. Takahashi: Appl. Phys. Lett., 20, 492 (1972).

以 上